

ИССЛЕДОВАНИЕ ТЕПЛОПРОВОДНОСТИ НАНОЖИДКОСТЕЙ НА ОСНОВЕ НАНОЧАСТИЦ ОКСИДА АЛЮМИНИЯ

С. П. Бардаханов¹, С. А. Новопашин², М. А. Серебрякова²

¹Институт теоретической и прикладной механики им. С.А. Христиановича СО РАН,
Новосибирск, Россия

²Институт теплофизики им. С.С. Кутателадзе СО РАН, Новосибирск, Россия
sanov@itp.nsc.ru

PACS 66.25.+g

В работе экспериментально исследована теплопроводность наножидкостей на основе наночастиц оксида алюминия (средний диаметр частиц 13 нм). В качестве базовых жидкостей использованы этиленгликоль и изопропанол. Для измерений использован нестационарный метод нагретой проволоочки. Показано, что теплопроводность наножидкостей при малых объёмных концентрациях наночастиц Al_2O_3 (<0,5 %) соответствует классической теории Максвелла. С дальнейшим ростом концентрации наночастиц в этиленгликоле теплопроводность отклоняется от теории в меньшую сторону, так как становится агрегативно неустойчивой, а в изопропанолу наблюдается аномальное отклонение от теории в большую сторону. В заключение обсуждаются возможные причины наблюдаемого явления.

Ключевые слова: наножидкость, теплопроводность.

1. Введение

Суспензии на основе наночастиц твердой фазы названы наножидкостями [1]. Теплопроводность суспензий с малой концентрацией частиц твердой фазы может быть описана теорией Максвелла [2]. Теория построена на основе ряда допущений: 1) концентрация частиц твердой фазы мала (расстояние между частицами существенно превышает их размер); 2) частицы неподвижны в жидкости; 3) частицы имеют сферическую форму; 4) для описания процесса теплопередачи справедливы уравнения кондуктивной теплопроводности. При использовании частиц нанометрового диапазона некоторые предположения могут нарушаться, в частности, наночастицы подвержены броуновскому движению и поверхностные явления могут играть заметную роль в процессе теплопередачи.

Наряду с фундаментальными проблемами описания теплопроводности наножидкостей, возможно их широкое практическое использование. С ростом производительности электронных устройств и развитием высокоэнергетичных технологий возникает необходимость создания эффективных охлаждающих систем и управления большими тепловыми потоками. Один из способов интенсификации теплообмена - повышение теплопроводности жидкости путём добавления твёрдых частиц с высокой теплопроводностью. Особый интерес при создании таких суспензий представляют наночастицы. В отличие от частиц микронного размера они медленнее осаждаются, не приводят к засорению и износу каналов и не подавляют турбулентность дисперсной фазы. Возможность их использования при создании эффективных теплоносителей является дополнительным стимулом для проведения многочисленных исследований.

Однако многие полученные к настоящему времени экспериментальные данные имеют большой разброс и зачастую противоречат друг другу. Часть данных свидетельствует об аномальном увеличении теплопроводности наножидкостей по сравнению с теорией [3-12]. Но в ходе совместных исследований, проведенных организациями из разных стран, аномального увеличения теплопроводности при малых концентрациях наночастиц не обнаружено [13].

Классификация наножидкостей и анализ теоретических подходов к моделированию коэффициентов переноса проведены в [14]. В частности отмечено, что строгая теория процессов переноса в наножидкостях пока не развита, а применение моделирования теплопроводности методами молекулярной динамики все таки дает предсказания отличные от классической теории.

Большой разброс экспериментальных данных связан с рядом объективных причин: методикой синтеза наночастиц, функцией распределения наночастиц по размерам, технологией приготовления наножидкости, а также методом измерения теплопроводности и интерпретации результатов.

Цель данной работы состоит в измерении теплопроводности наножидкостей на основе наночастиц Al_2O_3 и сравнении полученных результатов с классической теорией Максвелла.

2. Эксперимент

В работе использовались наночастицы оксида алюминия (Degussa, Germany). По данным производителя, средний диаметр частиц составляет 13 нм, удельная площадь поверхности 100 м²/г. На рисунке 1 показаны фотография, полученная на электронном просвечивающем микроскопе и гистограмма распределения частиц по размерам (Рис. 2).

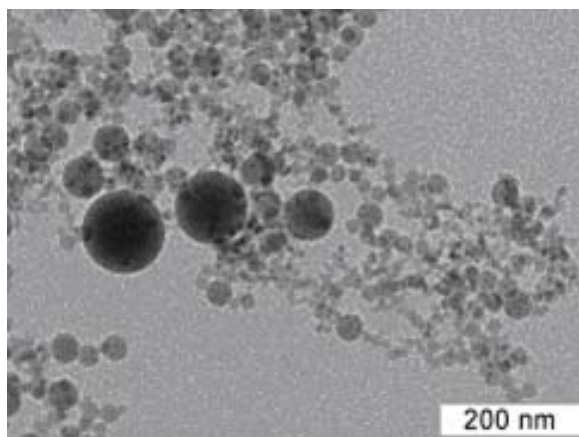


Рис. 1. Микрофотография порошка Al_2O_3 .

Для синтеза наножидкостей герметично закрытые пробирки со смесями необходимого количества базовой жидкости и порошка наночастиц помещались в ультразвуковую баню, мощность ультразвукового диспергатора 80 Вт, и обрабатывались в течение часа. Измерения теплопроводности проводились при температуре 25°C, для чего пробирки с наножидкостями помещались в жидкостный термостат.

Измерения теплопроводности наножидкостей проводились при помощи нестационарного метода нагретой проволоочки, реализованного в виде прибора для сопоставления теплового сопротивления жидкостей [15]. Используется платиновая проволоочка диаметром 20 мкм и длиной 5 мм. Проволочка нагревается коротким импульсом тока. В дальнейшем

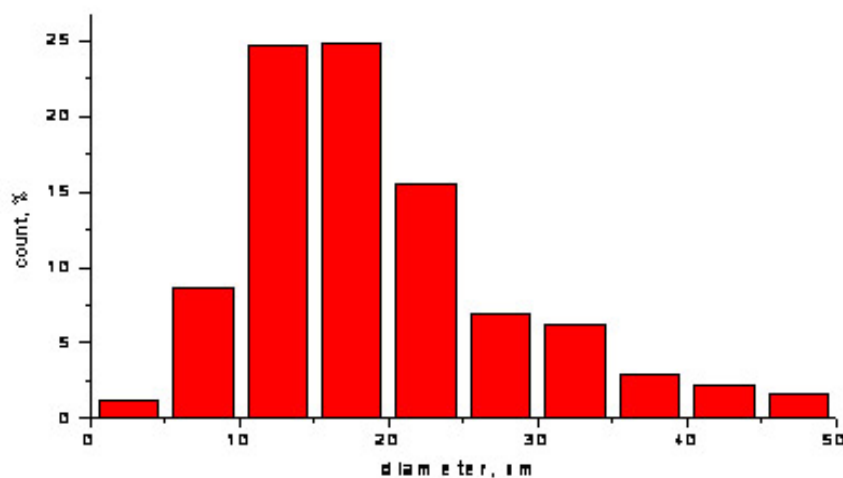


Рис. 2. Гистограмма распределения наночастиц по размерам

происходит остывание проволоочки за счет теплообмена с жидкостью. Эта же проволоочка используется в качестве термометра сопротивления. Динамика остывания проволоочки связана с теплопроводностью окружающей жидкости. Метод позволяет получить относительные величины. Для проведения количественных измерений требуются калибровочные измерения теплопроводности. В качестве измеряемой величины выбран интеграл напряжения на проволочке за определенное время. Калибровочная кривая зависимости табличного значения теплопроводности от интеграла напряжения приведена на Рис. 3. В качестве реперных точек использованы ВМ-4; 2 — этанол; 3 — 25% этанола, 75% воды; 4 — этиленгликоль; 5 — 50% этанола, 50% воды; 6 — 75% этанола, 25% воды; 7 — вода.

Эта кривая использовалась для измерения теплопроводности синтезированных наножидкостей.

3. Результаты измерений и обсуждение результатов

3.1. Наножидкости на основе этиленгликоля и наночастиц Al_2O_3

Для измерений было приготовлено пять наножидкостей на основе этиленгликоля и наночастиц оксида алюминия с объёмными концентрациями наночастиц: 0,28, 0,56, 0,84, 1,12 и 1,40%. Результаты измерений и прямая, соответствующая теории Максвелла, показаны на Рис. 4. Погрешность измерений не превышает размера точек на графике. Сравнение полученных данных с теорией говорит о том, что для малых объёмных концентраций (до $\sim 0,5\%$) теория Максвелла справедлива. С увеличением концентрации наножидкость становится неустойчивой к агломерации, что регистрировалось по выпадению осадка. Это привело к стабилизации величины теплопроводности на определенном уровне.

На рисунке 5 приведено сопоставление полученных данных с результатами, для наночастиц большего диаметра [16]. Как видно, жидкости на основе более крупных частиц оставались устойчивыми, и их теплопроводность достаточно хорошо согласуется с теплопроводностью, предсказанной теорией, до больших объёмных концентраций наночастиц. Вероятно, это связано с двумя факторами: во-первых, различие морфологии поверхности наночастиц вследствие синтеза их различными методами и, как следствие, стабилизация наножидкостей за счёт двойного электрического слоя происходит по-разному; во-вторых,

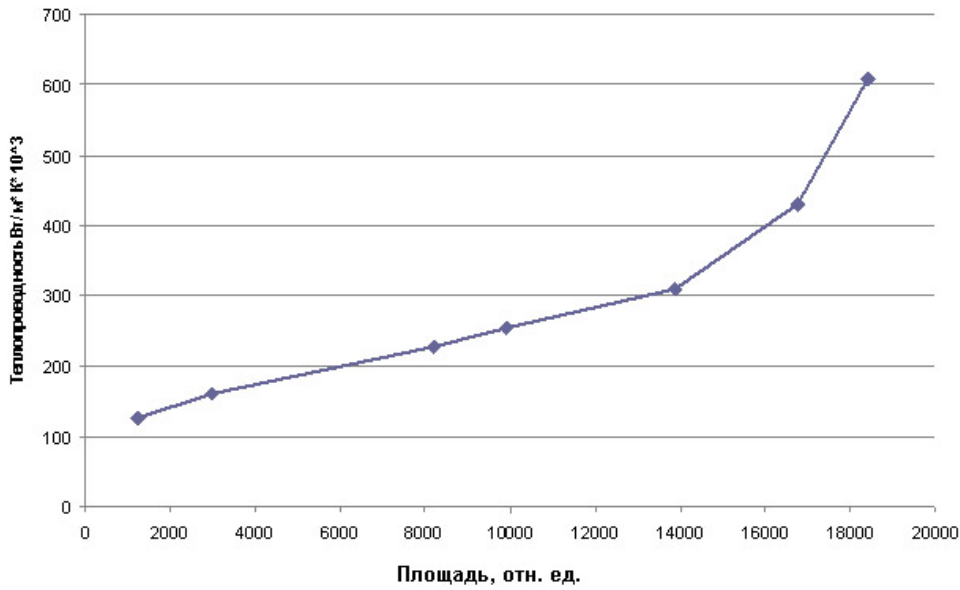


Рис. 3. Калибровочная кривая: 1 – ВМ-4; 2 – этанол; 3 – 25% этанола, 75% воды; 4 – этиленгликоль; 5 – 50% этанола, 50% воды; 6 – 75% этанола, 25% воды; 7 – вода

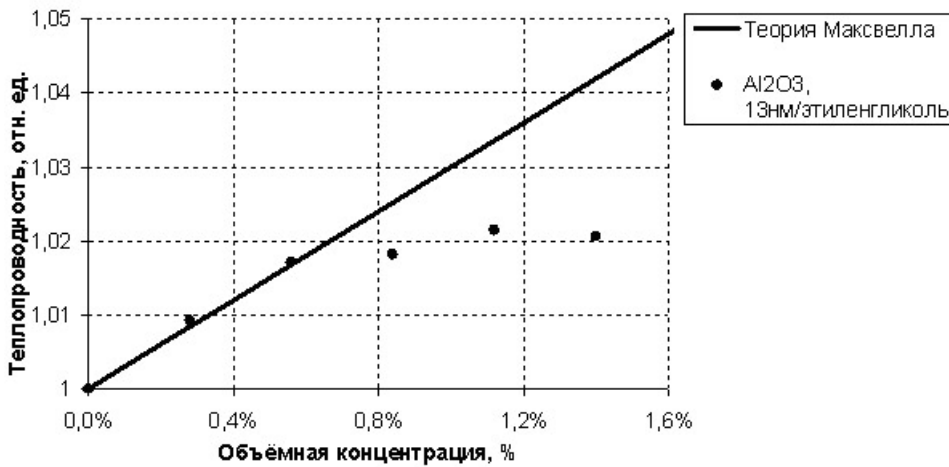


Рис. 4. Зависимость теплопроводности наножидкости на основе этиленгликоля от объемной концентрации наночастиц.

частицы меньшего диаметра имеют меньшую массу и более подвижны, а расстояние между ними меньше, чем между крупными частицами при той же объемной концентрации, поэтому вероятность образования ими агломератов, выше.

3.2. Наножидкости на основе изопропанола и наночастиц Al_2O_3

Для экспериментов было приготовлено девять наножидкостей на основе изопропанола и наночастиц оксида алюминия с объемными концентрациями: 0,20, 0,40, 0,59, 0,79, 0,99, 1,19, 1,38, 1,58 и 1,78%. Была проведена серия измерений: после приготовления образцов, спустя 11 дней и спустя 21 день после приготовления. Экспериментальные результаты и прямая, соответствующая теории Максвелла, представлены на Рис. 6. Значения точек

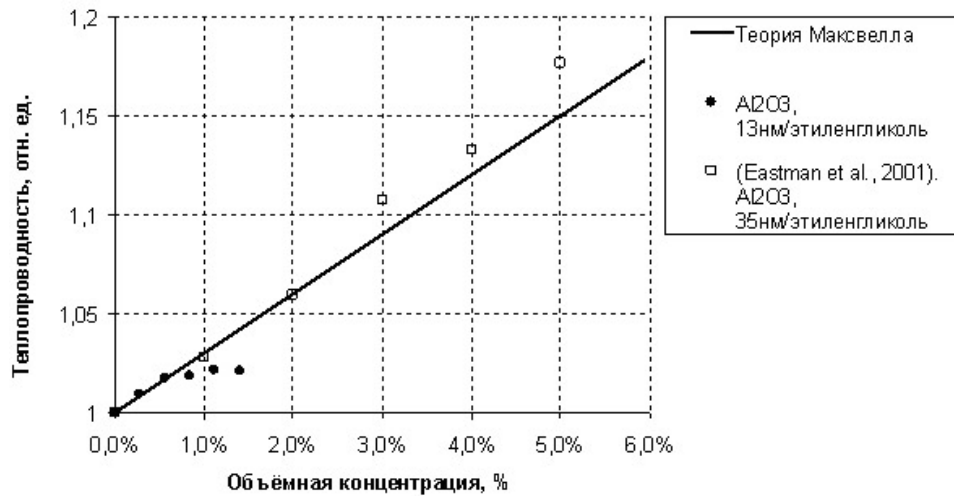


Рис. 5. Сравнение с ранее опубликованными данными [16] для наножидкости на основе этиленгликоля.

на графике — результат усреднения серии измерений, погрешность не превышает размеров самих точек.

Усреднённые результаты измерений и погрешность показаны на рисунке 7. В отличие от этиленгликоля, наножидкость остается устойчивой вплоть до концентраций 2%. Однако, при концентрациях выше 0,5% теплопроводность наножидкости на основе изопропанола проявляет аномальные свойства: экспериментальные данные дают значение, превышающее предсказания теории. Кроме того, следует отметить, что измерения, проведенные в разное время, после синтеза наножидкости дают заметный разброс данных, в то время как погрешность каждого конкретного измерения укладывается в размер точки на графике.

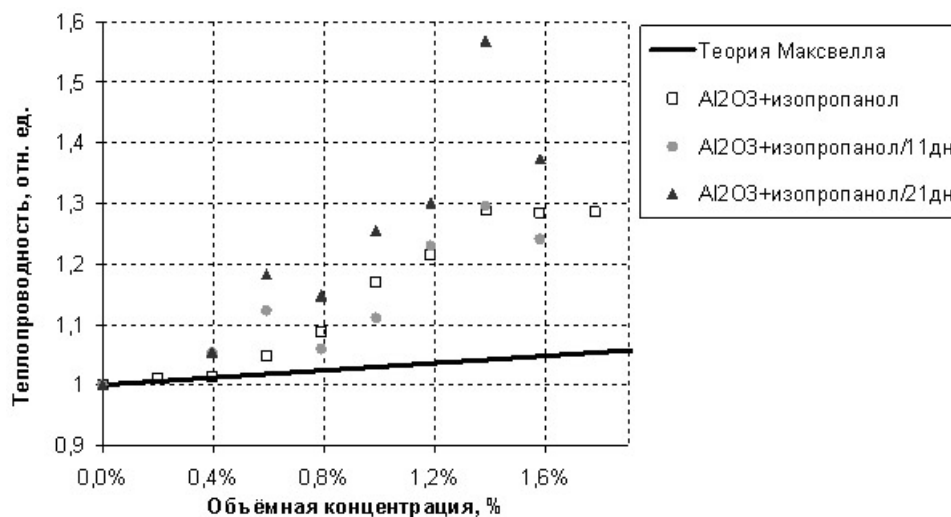


Рис. 6. Зависимость теплопроводности наножидкости на основе изопропанола от объемной концентрации наночастиц.

Экспериментальные данные показывают, что отклонение от теоретических значений для обеих жидкостей происходит при концентрациях наночастиц выше 0,5 %. Это может

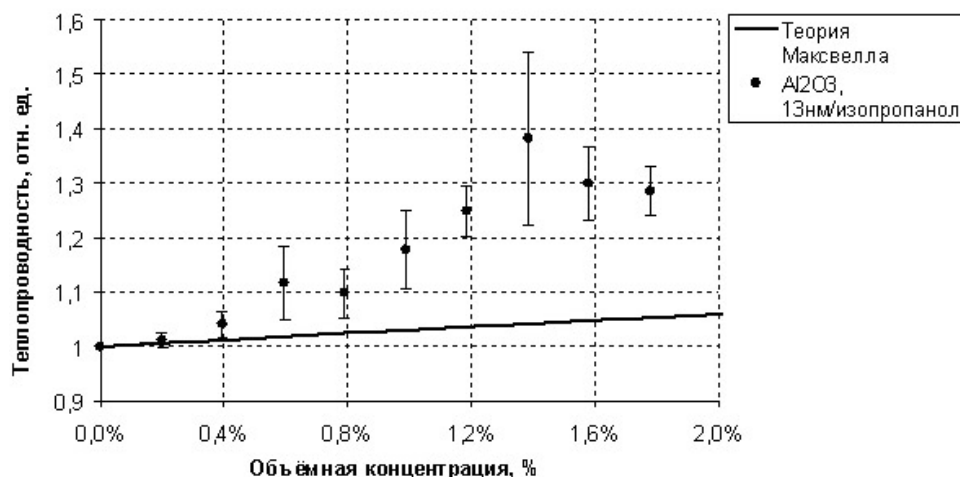


Рис. 7. Осредненная зависимость теплопроводности наножидкости на основе изопропанола от объемной концентрации наночастиц.

быть связано с тем, что для данных концентраций нарушаются допущения, положенные в основу теории. Устойчивость наножидкостей обеспечивается величиной потенциального барьера, возникающего вследствие двойных электрических слоев на границе жидкость — наночастица. Величина этого барьера зависит от электрохимического потенциала наночастиц в определенной жидкости, и очевидно, определяет различие устойчивости различных наножидкостей. Увеличение концентрации наночастиц увеличивает вероятность их непосредственного контакта вследствие броуновского движения, что может приводить к агрегации наночастиц.

Проблема аномального увеличения теплопроводности наножидкости на основе изопропанола более сложная. Учитывая, что в экспериментах наблюдается существенный разброс данных, полученных с большим временным интервалом, можно предположить, что в наножидкости реализуются случайные перколяционные цепи наночастиц, структура которых изменяется вследствие присоединения новых наночастиц и разрыва каких-либо цепей. Таким образом, наличие перколяционных цепей наночастиц может приводить к аномальному росту теплопроводности, а различные значения теплопроводности, измеренные с большим временным интервалом, связаны со случайным распределением перколяционных цепочек по длине и ориентации.

4. Заключение

В ходе выполнения работы были получены следующие результаты:

- (1) Показано, что теплопроводность наножидкостей при малых объемных концентрациях наночастиц Al_2O_3 (<0,5 %) соответствует классической теории Максвелла,
- (2) Обнаружено, что с ростом концентрации наночастиц в этиленгликоле теплопроводность отклоняется от теории в меньшую сторону, так как наножидкость становится агрегативно неустойчивой.
- (3) Обнаружено, что теплопроводность наножидкости на основе изопропанола для концентрации наночастиц Al_2O_3 выше 0,5 % обладает аномальной теплопроводностью. Предложена перколяционная модель этого явления для подтверждения которой требуется проведение дополнительных исследований.

Благодарности

Работа была выполнена при финансовой поддержке РФФИ (грант № 09-08-00282), гранта Президента РФ по поддержке ведущих научных школ НШ-3563.2010.1.

Литература

- [1] Choi S.U.S. Enhancing thermal conductivity of fluids with nanoparticles, in: D.A. Siginer, H.P. Wang (Eds.). *Developments and Applications of Non-Newtonian Flows*, 1995, FED-231/MD 66, ASME, New York, 99-105.
- [2] Maxwell J.C. *A Treatise on Electricity and Magnetism*, 2nd ed. — Oxford: Clarendon Press. — 1881, 1, 435.
- [3] Eastman J.A., Choi S.U.S., Li S., Thompson L.J., Enhanced thermal conductivity through the development of nanofluids // *Proceedings of the Symposium on Nanophase and Nanocomposite Materials II*. Materials Research Society, USA —1997. — 457. — 3-11.
- [4] Eastman J.A., Choi S.U.S., Li S., Yu W., Thompson L.J. Anomalous increased effective thermal conductivities of ethylene glycolbased nanofluids containing copper nanoparticles // *Applied Physics Letters*. — 2001. — 78. — 718-720.
- [5] Lee S., Choi S.U.S., Li S., Eastman J.A. Measuring thermal conductivity of fluids containing oxide nanoparticles. // *Journal of Heat Transfer*. — 1999. — 121. — 280-289.
- [6] Wang X., Xu X., Choi S.U.S. Thermal conductivity of nanoparticle–fluid mixture. // *Journal of Thermophysics and Heat Transfer*. — 1999. — 13. — 474-480.
- [7] Xuan Y., Li Q. Heat transfer enhancement of nanofluids. // *International Journal of Heat and Fluid Flow*. — 2000. — 21. — 58-64.
- [8] S.K. Das, N. Putra, P. Thiesen, W. Roetzel, Temperature dependence of thermal conductivity enhancement for nanofluids // *Journal of Heat Transfer*. — 2003. — 125. — 567-574.
- [9] Murshed S.M.S., Leong, K.C. Yang C. Enhanced thermal conductivity of TiO₂–water based nanofluids // *International Journal of Thermal Sciences*. — 2005. — 44. — 367-373.
- [10] Hong T., Yang H., Choi C.J. Study of the enhanced thermal conductivity of Fe nanofluids. // *Journal of Applied Physics*. — 2005. — 97. — 064311-1-064311-4.
- [11] Li C.H., Peterson G.P. Experimental investigation of temperature and volume fraction variations on the effective thermal conductivity of nanoparticle suspensions (nanofluids). // *Journal of Applied Physics*. — 2006. — 99. — 084314-1-084314-8.
- [12] Wang X.Q, Mujumbar A.S. Heat transfer characteristics of nanofluids: a review. // *Inter. J. Therm. Sci.* — 2007. — 46. — 1-19.
- [13] Buongiorno J., Venerus D. C., Prabhat N. et al., A benchmark study on the thermal conductivity of nanofluids, // *Journal of Applied Physics*. — 2009. — 106. — 094312.
- [14] Рудяк В.Я., Белкин А.А. Моделирование коэффициентов переноса наножидкостей // *Наносистемы: физика, химия, математика*. — 2010. — Т. 1, № 1. — С.156 — 177.
- [15] Skripov P.V., Smotritskiy A.A., Starostin A.A., Shishkin A.V. A Method of Controlled Pulse Heating: Applications // *J. Eng. Thermophys.* — 2007. — 16, 3. — 155-163.
- [16] Eastman J.A., Choi S.U.S., Li S., Thompson L.J., Lee S. Enhanced thermal conductivity through the development of nanofluids // *Proc. Mater. Res. Soc. Symposium*. Materials Res. Soc., Pittsburgh, PA. USA. Boston. MA. USA. — 1997. — 457. — 3-11.